

Rec'd PCT/PTO 06 DEC 2004

10/516797

7/3

日本国特許庁
JAPAN PATENT OFFICE

PCT/JP 03/07117

05.06.03

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出願年月日 2002年 6月 7日
Date of Application:

出願番号 特願2002-166522
Application Number:
[ST. 10/C]: [JP 2002-166522]

REC'D 25 JUL 2003

WIPO PCT

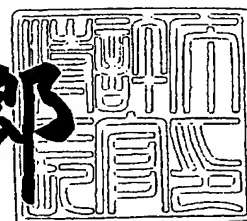
出願人 ソニー株式会社
Applicant(s):

PRIORITY DOCUMENT
SUBMITTED OR TRANSMITTED IN
COMPLIANCE WITH
RULE 17.1(a) OR (b)

2003年 7月 9日

特許庁長官
Commissioner,
Japan Patent Office

太田信一郎



出証番号 出証特2003-3054656

【書類名】 特許願

【整理番号】 0290225101

【提出日】 平成14年 6月 7日

【あて先】 特許庁長官 殿

【国際特許分類】 H05B 33/10
C30B 29/54

【発明者】

【住所又は居所】 東京都品川区北品川 6 丁目 7 番 3 5 号 ソニー株式会社
内

【氏名】 築嶋 克典

【発明者】

【住所又は居所】 東京都品川区北品川 6 丁目 7 番 3 5 号 ソニー株式会社
内

【氏名】 成井 啓修

【発明者】

【住所又は居所】 東京都品川区北品川 6 丁目 7 番 3 5 号 ソニー株式会社
内

【氏名】 目々澤 聡彦

【発明者】

【住所又は居所】 東京都品川区北品川 6 丁目 7 番 3 5 号 ソニー株式会社
内

【氏名】 佐々木 浩司

【特許出願人】

【識別番号】 000002185

【氏名又は名称】 ソニー株式会社

【代理人】

【識別番号】 100086298

【弁理士】

【氏名又は名称】 船橋 國則

【電話番号】 046-228-9850

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 007364

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【包括委任状番号】 9904452

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 有機薄膜の形成方法

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 有機材料からなる単一の成膜成分を気化させたガスを発生させ、

基板が収納された処理室内に前記ガスを輸送供給し、
前記処理室内の基板表面に前記成膜成分を保った有機材料を堆積させる
ことを特徴とする有機薄膜の形成方法。

【請求項 2】 請求項 1 記載の有機薄膜の形成方法において、
前記有機材料を堆積させる際、前記基板を冷却する
ことを特徴とする有機薄膜の形成方法。

【請求項 3】 請求項 1 記載の有機薄膜の形成方法において、
前記有機材料の堆積を繰り返し行うことにより異なる成膜成分を積層する
ことを特徴とする有機薄膜の形成方法。

【請求項 4】 請求項 1 記載の有機薄膜の形成方法において、
前記ガスは、キャリアガスを利用して前記処理室内に輸送供給される
ことを特徴とする有機薄膜の形成方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、有機薄膜の形成方法に関し、特に是有機EL素子のような光学素子を構成する有機薄膜の形成に好適に用いられる有機薄膜の形成方法に関する。

【0002】

【従来の技術】

有機材料のエレクトロルミネッセンス(electroluminescence: 以下ELと記す)を利用した有機EL素子は、陽極と陰極との間に有機層を挟持してなる。このような構成の有機EL素子においては、有機層の材料選択によって各色に発光する発光素子を得ることが可能であり、各色に発光する発光素子を所定状態で配列形成することによって、マルチカラー表示またはフルカラー表示が可能な表示装

置を構成することが可能である。

【0003】

ところで、このような有機EL素子の製造においては、真空蒸着法による有機層の形成が行われている。真空蒸着法は、蒸発源の上方に当該蒸発源に対して基板を対向させて配置した状態で、当該蒸発源から蒸着材料を蒸発させることで、当該基板の表面に蒸着材料を供給し堆積させる方法である。このような、真空蒸着法による成膜において成膜速度を制御するには、蒸発源の温度を変化させるなどして、蒸着材料の蒸発レートを変化しなければならない。しかし、温度と蒸発レートとはリニアに対応しておらず、また、温度を変化させることで蒸発レートが不安定な挙動を示すため、正確な制御を困難である。また、温度変化に対する蒸発レートの応答性も悪いため長いプロセス時間が必要になり、生産性が悪いといった問題もある。

【0004】

そこで、このような真空蒸着法にかわる成膜方法として、有機気相堆積法 (organic vapor phase deposition: OVPD法) が提案されている (特表2001-523768公報および特表2000-504298号公報)。これらの公報に開示されているように、OVPD法は、基板が収納された反応器内に複数の有機前駆物質を気相で供給してこれらの有機前駆物質を反応させ、反応によって生じた有機化合物を基板の表面に積層させて有機薄膜を形成する方法である。この際、有機前駆物質の反応は、化学反応または複数の有機前駆物質の混合であり、また有機前駆物質同士は供与体・受容体の関係であるか、ゲスト・ホストの関係であっても良い。

【0005】

このようなOVPD法においては、反応器内への有機前駆物質の供給速度によって成膜速度が調整されるため、真空蒸着法と比較して成膜速度の制御性が良好で成膜速度も速い。

【0006】

【発明が解決しようとする課題】

ところが、OVPD法による有機薄膜の形成には、次のような課題があった。

すなわち、OVPD法においては、反応器内に複数種類の有機前駆物質を供給し、反応器内においてこれらを反応（化学反応または混合）させているため、反応器内における有機前駆物質の混合状態が不均一であったり、また混合状態が均一であっても反応器内における温度分布のばらつきがある場合には反応（化学反応）が不均一になる。これにより、基板面内に形成される有機薄膜の膜質にばらつきが生じやすい。

【0007】

さらに、有機前駆物質の反応によって反応熱が発生する場合もあり、基板上に既に形成されている有機薄膜が反応熱の影響によって劣化する。したがって、上述したような複数の有機膜を積層することで発光層を含む有機層を形成する有機EL素子の製造にOVPD法を適用した場合には、上述した反応熱の影響によって下層の有機膜が劣化し、良好な素子特性を得ることが困難であった。

【0008】

そこで本発明は、成膜面において発熱することなく、かつ基板面内に均一な膜質の有機薄膜を形成することが可能な有機薄膜の形成方法を提供することを目的とする。

【0009】

【課題を解決するための手段】

このような目的を達成するための本発明の有機薄膜の形成方法は、有機材料からなる単一の成膜成分を気化させたガスを発生させ、このガスを基板が収納された処理室内に輸送供給し、この処理室内の基板表面に成膜成分を保った有機材料を堆積させる方法である。

【0010】

このような有機薄膜の形成方法では、処理室内に輸送供給された有機材料からなる単一の成膜成分のみが、その成膜成分を保って基板表面に堆積される。このため、基板表面においては、成膜成分の混合の不均一性が生じたり、また成膜成分同士の反応による反応熱が生じることはない。

【0011】

【発明の実施の形態】

以下、本発明の有機薄膜の形成方法の実施の形態を図面に基づいて詳細に説明する。

【0012】

<成膜装置>

図1は実施形態の有機薄膜の形成に用いる成膜装置の一例を示す概略図である。この図に示す成膜装置1は、有機薄膜の形成処理が施される基板Wを収納するための処理室11を備えている。

【0013】

この処理室11には、排気システム12が備えられており、内部が所定の圧力にコントロールされる。ここでの図示は省略したが、排気システム12によって排気されるガスは、トラップを通り余分な材料を捕獲し、後で説明する不活性ガス（例えばN₂）のみが、装置外に排出される構成となっており、この排気はスクラバーを通過後に大気開放される構成となっている。

【0014】

そして、この処理室11内には基板Wを支持するための基板支持台13が収納され、基板支持台13に支持した状態の基板Wの温度制御が自在な温度制御機構を備えると共に、保持した基板Wをその面内において回転またはスライドさせる駆動機構を備えていても良い。

【0015】

また、この処理室11には、基板支持台12に基板Wを固定させる作業を行うためのロードロック室14が設けられている。このロードロック室14は、内部をポンプで排気でき、また不活性ガス等で自在に置換出来る構成となっており、不活性ガス雰囲気内において基板支持台13に基板Wを固定させ、ポンプで排気し、減圧にした状態でロードロック室14－処理室11間のゲートバルブ（図示省略）を開くことにより、基板Wを固定させた基板支持台13を処理室11内に所定状態で配置収納することが可能である。

【0016】

また、処理室11には、処理室11内にガスGを供給する供給管ライン21が接続されている。この供給管ライン21の先端であるガス導入口21aは、処理

室 11 内に挿入され、処理室 11 内に所定状態で配置収納された基板支持台 13 の基板保持面に向けて、ガス G を吹き出すように設定されている。

【0017】

一方、供給管ライン 21 の他端は、キャリアガスとなる高純度の不活性ガス（例えば N₂、He、Ar）または水素などのガス精製装置 22（またはボンベ）に接続されている。そして、ガス精製装置 22 から処理室 11 までの間の供給管ライン 21 には、ガス精製装置 22 側から順に、圧力調整機 23、マスフローコントローラ 24、および原料供給機構 25 が設けられ、さらにベントライン 26 が接続されると共に、ベントライン 26 と処理室 11 との間にバルブ V1 が設けられた構成になっている。また、ベントライン 26 にも、バルブ V2 が設けられていることとする。

【0018】

このうち、原料供給機構 25 は、有機薄膜の原料となる有機材料が貯蔵された原料容器 25a、供給管ライン 21 から分岐して原料容器 25a に挿入される導入管 25b、この導入管 25b よりも下流側の供給ライン 21 から分岐して原料容器 25a に挿入された排出管 25c を備えている。そして、供給管ライン 21 における導入管 25b と排出管 25c との分岐の間、導入管 25b、および排出管 25c には、それぞれバルブ V3、V4、V5 が設けられている。

【0019】

以上のような構成の成膜装置 1 において、マスフローコントローラ 24～処理室 11 までの配管、容器等はすべて、所定の高温に温度制御されることとする。温度制御のための加熱方式は、オープン内などに設置する空気恒温槽方式でも、高温オイルなどを循環させる方式でも、RF 加熱（Radio Frequency 加熱：高周波誘導加熱）方式でも、ランプ加熱方式でも良く、特に限定されることは無い。

【0020】

<有機薄膜の形成方法>

次に、以上のような構成の成膜装置 1 を用いた有機薄膜の形成方法を説明する。ここでは、一例として、有機 EL 素子に一般的に用いられる Alq₃ [tris(8-quinolinolato)aluminum(III)] からなる電子輸送性発光層を形成する場合の実

施の形態を説明する。

【0021】

まず、ロードロック室14内において基板支持台13に基板Wを保持固定し、ロードロック室14内を減圧にした後、それぞれほぼ同じ圧力に保たれたロードロック室14と処理室11との間のゲートを開けて、基板支持台13を処理室11内の所定位置にセットする。この際、ロードロック室14内と処理室11内とは、例えば133Paに保つ。そして、基板支持台13の温度制御機構によって基板Wを20℃程度に保持する。また、基板支持台13に回転またはスライド機構が備えられている場合、この機構によって基板Wを回転させておくこととし、これにより膜厚の均一な成膜が行われるようにする。

【0022】

一方、原料供給機構25の原料容器25aには、有機薄膜の原料となる有機材料（ここではA1q3）を貯蔵すると共に、原料容器25a内の有機材料を所定温度（A1q3の場合には280℃）に加熱する。これにより、原料容器25a内に、加熱温度に対する有機材料（A1q3）の蒸気圧分を気体として存在させておく。また、マスフローコントローラ24～処理室11までの配管、容器等はすべて、所定の高温に温度制御（例えば280℃程度）に加熱しておくこととする。

【0023】

以上のような状態で、バルブV2, V3を閉じ、バルブV1, V4, V5を開く。そして、高純度ガス精製装置22から、圧力調整機23により、例えば0.2MPaに圧力コントロールされ、マスフローコントローラ24により高精度に流量コントロールされた不活性ガス（例えばN₂）g1を、供給管ライン21に流す。流量の一例としては、1000sccm（standard cc/min: 標準状態での1分あたりの流量）である。そして、不活性ガスg1を原料容器25aに供給し、原料容器25a内において気化された有機材料（A1q3）のガスを、成膜成分ガスg2とし、不活性ガスg1をキャリアガスとして排出管25cおよび供給管ライン21から処理室11内に輸送供給する。

【0024】

これにより、処理室 11 内の基板支持台 13 に固定保持された基板 W に向けて、ガス導入口 21 a から成膜成分ガス g 2 として有機材料 (A1 q 3) ガスを含むガス G が供給される。そして、20℃の温度に保たれた基板 W の表面に有機材料 (A1 q 3) がその成分を保った状態で堆積され、A1 q 3 からなる有機薄膜が形成される。

【0025】

この際、有機薄膜の膜厚は、処理室 11 内へのガスの供給時間によって制御され、所定膜厚の有機薄膜が形成されたところで、バルブ V1, V4, V5 を閉じ、バルブ V2, V3 を開き、処理室 11 内への成膜成分ガス g 2 の供給を停止すると共に、処理室 11 内を不活性ガス g 1 で置換する。

【0026】

以上の後、基板 W および基板支持台 13 をロードロック室 14 に戻し、ロードロック室 14 内の圧力を常圧に戻して基板 W を取出す。このとき、有機薄膜が形成された基板 W が大気に触れないように、ロードロック室 14 内において基板 W を専用の N₂ ガス封止箱に移載し、N₂ ガス封止箱を成膜装置 1 の外へ持ち出すようにしても良い。

【0027】

以上の有機薄膜の形成方法においては、有機材料からなる単一の成膜成分ガス g 2 のみが不活性ガスと共に処理室 11 内に輸送供給され、処理室 11 内に収納された基板 W 表面には、有機材料がその成膜成分を保って基板 W 表面に堆積される。このため、基板 W 表面においては、成膜成分の混合の不均一性が生じたり、また成膜成分同士の反応による反応熱が生じることはない。したがって、反応熱による下層有機膜の劣化を引き起こすことなく、かつ基板 W 面内において膜質が均一な有機薄膜を形成することが可能になる。

【0028】

尚、上述した有機薄膜の形成方法においては、基板 W の表面に単層膜 (A1 q 3) を形成する場合を説明したが、この基板 W 上に複数の有機薄膜を積層形成する場合には、処理室 11 とガス精製装置 22 (または圧力調整機 23) との間に、マスフローコントローラ 24 ~ バルブ V1 までの部分を設けた複数の供給ライ

ン 21 を設けて成膜装置を用いる。このような成膜装置を用いることで、異なる有機材料からなる成膜成分ガスを、順次、複数の供給ライン 21 から処理室 11 内に導入し、複数の有機薄膜を連続的に積層形成することが可能になる。

【0029】

次に、このような複数の有機薄膜の連続成膜の例として、有機 EL 素子の製造に本発明の有機薄膜の形成方法を適用した実施の形態を説明する。

【0030】

図 2 は、有機 EL 素子の構成の一例を示す断面図である。有機 EL 素子 100 は、ガラスなどからなる基板 W 上に、第 1 電極 101、有機層 102、および第 2 電極 103 がこの順で積層された構成になっている。第 1 電極 101 は陽極（または陰極）として用いられ、第 2 電極 103 は陰極（または陽極）として第 1 電極 101 と対で用いられる。

【0031】

有機層 102 は、陽極側（ここでは例えば第 1 電極 101 側）から陰極側（ここでは例えば第 2 電極 103 側）に向かって順に、正孔注入層 102a、正孔輸送層 102b、発光層 102c、電子輸送層 102d、さらには電子注入層 102e 等の有機薄膜を積層してなる。これらの各層（有機薄膜層）102a～102e は、発光素子 5 の発光色毎に異なる材料を用いてパターン形成されている。尚、有機層 102 は、このような層構造に限定されることはなく、少なくとも発光層を有する構成であれば、必要に応じた積層構造を選択することができる。

【0032】

また、基板 W 上に形成された有機 EL 素子 100 は、ここでの図示を省略した保護膜、封止剤などによって封止されている。

【0033】

このような構成の有機 EL 素子 100 の製造においては、有機層 102 を構成する各有機薄膜層 102a～102e の形成に、上述した有機薄膜の形成方法が適用される。この際、図 1 を用いて説明した成膜装置 1 において、複数の供給ラインを設けた成膜装置を用いることで、各有機薄膜層 102a～102e を連続的に形成することができる。

【0034】

特に、各有機薄膜層 102a～102e が、ホストとなる有機材料にドーパントとして他の有機材料を添加した構成である場合には、ホスト層とドーパント層とを連続的に形成することで、デルタドーピング的にドーパントが添加された各有機薄膜層 102a～102e を積層形成することができる。

【0035】

この場合、ホスト層とドーパント層とは、それぞれ上述したように下層に熱的な影響を及ぼすことなく、かつ膜質が均一に形成されるため、ホスト層とドーパント層との膜厚を調整することで、ドーパント濃度が基板面内で高精度に調整され、制御性に優れた各有機薄膜層 102a～102e を形成することが可能である。

【0036】

また、ホスト層とドーパント層との膜厚を調整することで、ドーパント濃度が基板面内で高精度に調整されるため、各有機薄膜層 102a～102e の設計の自由度（すなわち有機 EL 素子の設計の自由度）を得ることができる。

【0037】

例えば、図 3 に示すように、所定膜厚のホスト層 A を上下層の界面に接して設け、これらのホスト層 A 間にドーパント層 B を形成することで、ホストの中央部のみにドーパントを添加した有機薄膜層（例えば発光層 102c）を形成することが可能であり、これによりドーパントが近すぎるために起こる濃度消光を回避することができる。

【0038】

また、発光層 102c における発光部をドーパント層の位置で制御できるため、自発光による素子の劣化も抑えることが出来る。

【0039】

また、図 4 の様に、ホスト層 A 間におけるドーパント層 B の膜厚を変化させることで、下層との界面に近い位置のドーパント量を少なく、上層との界面に近い位置のドーパント量を多くしたり、その逆にしたりと設計の自由度が増す。

【0040】

さらに、図5の様にホスト層A間におけるドーパント層Bの膜厚は一定であるが、ホスト層Aの厚さを制御することで、実効的なドーパント濃度を制御できる。このことは、図4の場合と同様、有機EL素子を作製する場合の、設計の自由度を増加させることが出来る。

【0041】

尚、各有機薄膜層102a～102eは、基板W上の各画素にパターン形成される。このため、上記成膜装置を用いた各有機薄膜層102a～102eの連続成膜においては、基板Wの成膜表面に対向させて画素毎に開口部を有するマスクを配置し、このマスクの開口部を介して、ガス導入口21aから処理室11内に導入したガスGを基板Wの表面に供給することになる。

【0042】

この場合、上述した有機薄膜の形成方法であれば、真空蒸着法とは異なり、成膜成分ガスの供給方向が自在であるため、基板の成膜表面を下方に向ける必要がない。したがって基板の成膜表面（およびマスク）を略垂直に配置して有機薄膜の形成を行うことが可能であり、成膜表面に対向させて配置されるマスクの撓みを防止することができる。

【0043】

また、図1を用いて説明した成膜装置1においては、ガス導入口21aを複数設け、基板Wの成膜表面に対して均等に配置する等の構成とすることで、基板W面の各部に対して同一方向からガスGを供給することができる。このため、真空蒸着法においては、マスクを用いた場合のシャドウ効果により有機薄膜パターンの形成精度にばらつきが生じていたが、このような課題を解決することもできる。また、このような成膜装置の構成であれば、基板W表面に対して均一な膜厚での成膜を行うために、基板支持台13をスライドまたは回転させる必要はなく、装置構成を小型化することができる。

【0044】

【発明の効果】

以上説明したように、本発明の有機薄膜の形成方法によれば、処理室内に有機材料からなる単一の成膜成分ガスのみ供給し、その成膜成分を保って基板表面に

有機材料を堆積させる構成としたことで、成膜成分の混合の不均一性が生じたり、また成膜成分同士の反応による反応熱が生じることなく有機薄膜の形成を行うことが可能になる。したがって、反応熱による下層有機膜の劣化を引き起こすことなく、かつ膜質が均一な有機薄膜を形成することが可能になる。この結果、この有機薄膜の形成方法を適用して有機EL素子のような光学素子を形成した場合、特性の良好な素子を得ることが可能になる。

【図面の簡単な説明】

【図1】

本発明の有機薄膜の形成方法を行うための成膜装置の構成図である。

【図2】

本発明を適用して製造される有機EL素子の構成例を示す断面図である。

【図3】

本発明を適用して得られる有機EL素子の発光層の層構造の第1例を示す断面図である。

【図4】

本発明を適用して得られる有機EL素子の発光層の層構造の第2例を示す断面図である。

【図5】

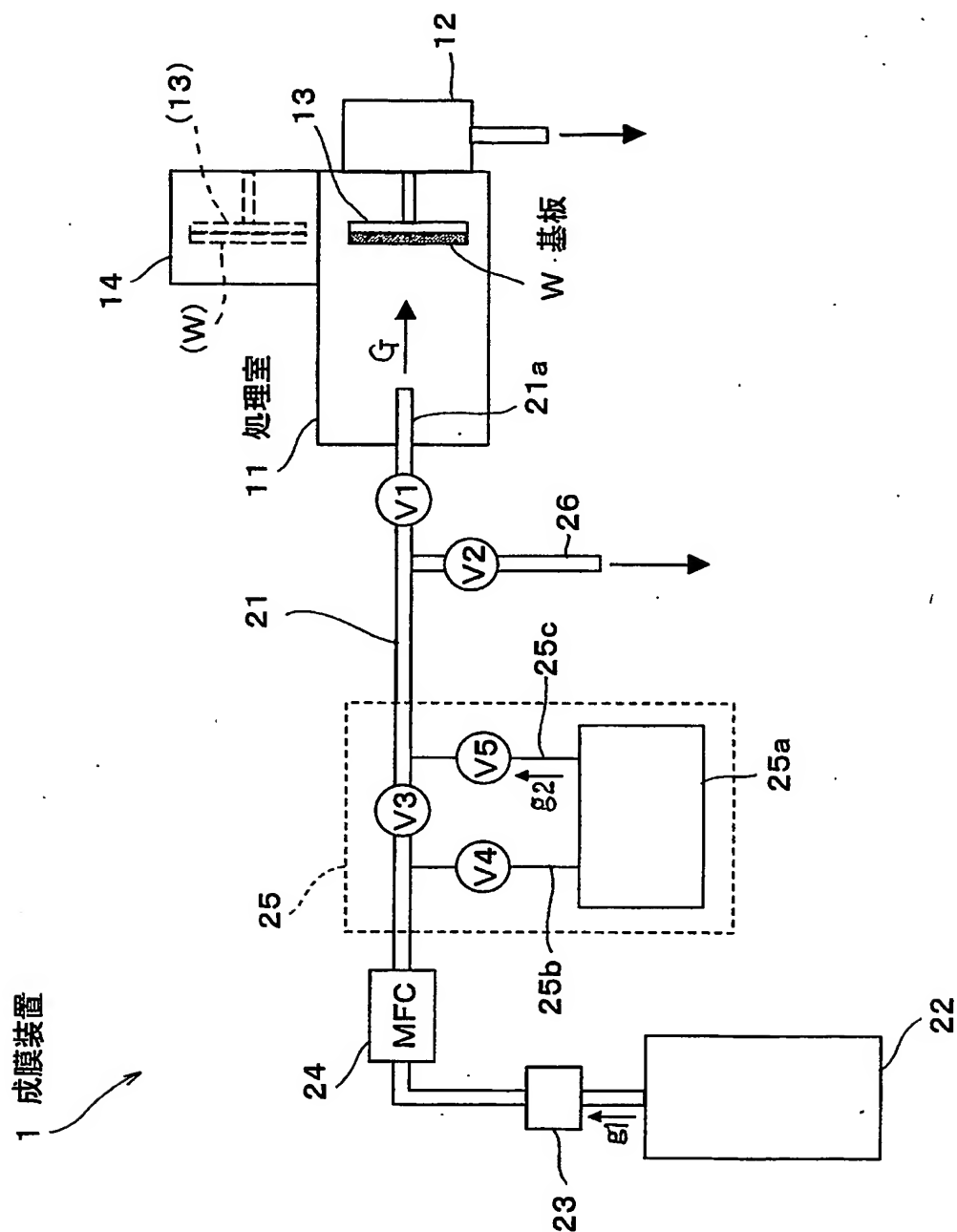
本発明を適用して得られる有機EL素子の発光層の層構造の第3例を示す断面図である。

【符号の説明】

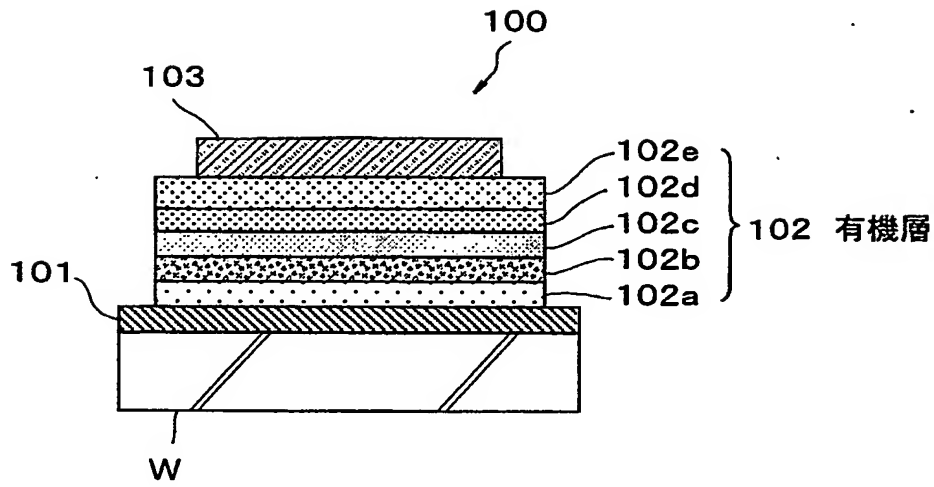
11…処理室、g1…不活性ガス（キャリアガス）、g2…成膜成分ガス、W…基板

【書類名】 図面

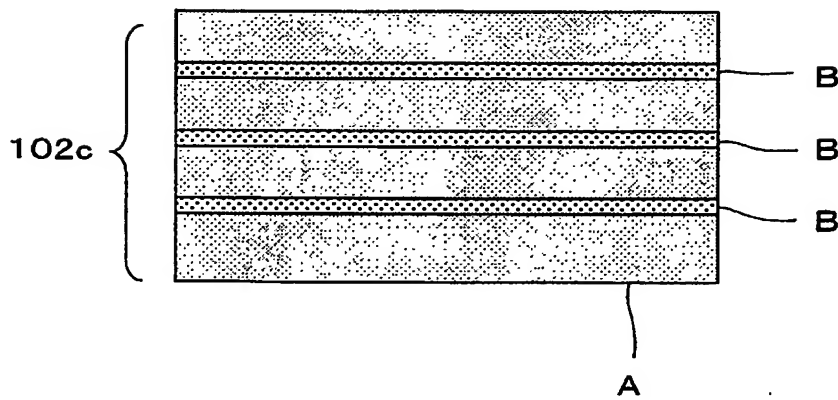
【図 1】



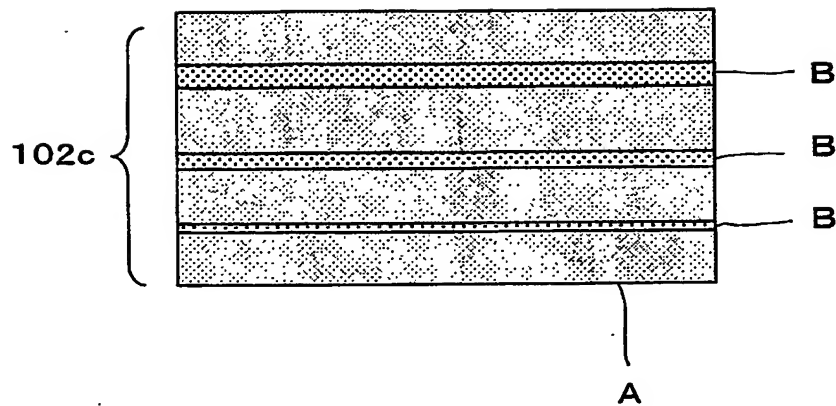
【図 2】



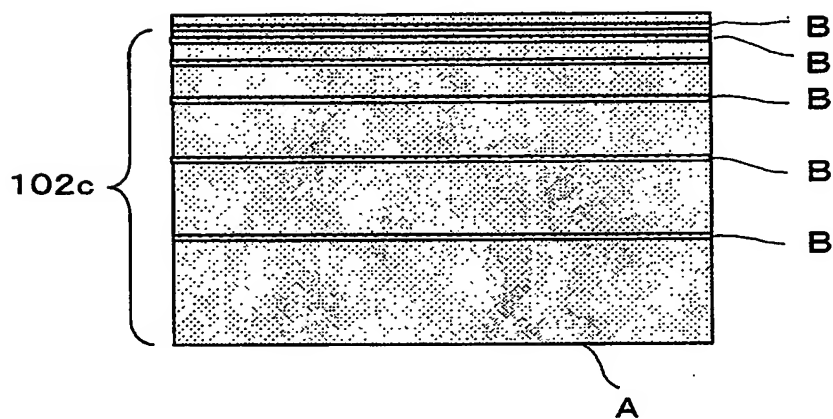
【図 3】



【図4】



【図5】



【書類名】

要約書

【要約】

【課題】 成膜面において発熱することなく、かつ基板面内に均一な膜質の有機薄膜を形成することが可能な有機薄膜の形成方法を提供する。

【解決手段】 有機材料からなる単一の成膜成分を気化させたガス（成膜成分ガス） g_2 を発生させ、基板 W が収納された処理室11内に成膜成分ガス g_2 を輸送供給する。そして、処理室11内の基板 W 表面に、成膜成分を保った有機材料を堆積させ、有機薄膜を形成する。有機材料を堆積させる際には、基板 W を冷却しておく。成膜成分ガス g_2 は、例えば不活性ガス g_1 等をキャリアガスとして処理室11内に輸送供給される。また、有機材料の堆積を繰り返し行うことにより、異なる成膜成分からなる有機薄膜を積層形成する。

【選択図】

図1

特願 2002-166522

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号

[000002185]

1. 変更年月日

1990年 8月30日

[変更理由]

新規登録

住 所

東京都品川区北品川6丁目7番35号

氏 名

ソニー株式会社

2. 変更年月日

2003年 5月15日

[変更理由]

名称変更

住所変更

住 所

東京都品川区北品川6丁目7番35号

氏 名

ソニー株式会社